

Effet de la surface de la filière sur l'apparition du défaut oscillant en extrusion de polymère linéaire

A. Allal¹, B. Vergnes²

¹ IPREM-EPCP, Université de Pau et des Pays de l'Adour,
Hélioparc, 2 Avenue Pierre Angot, 64053 Pau Cedex 9 (France).

² MINES ParisTech, CEMEF, UMR CNRS 7635, BP 207, 06904 Sophia Antipolis Cedex (France)

Résumé : Ce travail porte sur la relation entre le défaut oscillant (stick-slip) et le glissement moléculaire à la surface de la filière pour les polymères linéaires. En considérant le modèle de glissement de Brochard-de Gennes et la dynamique moléculaire à la paroi, nous proposons une expression qui donne la contrainte critique de cisaillement à l'apparition du défaut oscillant en fonction de la mouillabilité du polymère sur la surface de la filière et, plus précisément, en fonction de l'angle de contact apparent entre le polymère et la paroi.

Abstract: In this paper, we investigate the relationships between stick-slip defect and molecular slip at the wall for linear polymers. By considering Brochard-de Gennes slip model and molecular chain dynamics at the wall, we propose an expression for the critical shear stress at the onset of stick-slip as a function of the wettability of the polymer on the die surface or, more precisely, as a function of the apparent contact angle between polymer and die surface.

Mots clés : Instabilités d'écoulement, défaut oscillant, glissement, polymères fondus, mouillage.

1. Introduction

Dans l'industrie de la plasturgie, le procédé d'obtention de produits finis ou semi-finis le plus utilisé est l'extrusion. Ce procédé consiste à faire passer un matériau plastique ou fondu à travers une filière. Par ce procédé sont obtenus les films, les plaques, les tubes, les profilés ...

Le caractère viscoélastique des polymères fondus donne lieu en écoulement à des défauts de surface (peau de requin ou « *sharkskin* ») ou de volume (défaut oscillant ou « stick-slip », hélicoïdal et/ou chaotique) qui sont nommés de façon générale instabilités. Ces phénomènes sont un problème pour l'industrie de la transformation car ils limitent la cadence de production ainsi que la qualité des produits extrudés [1].

Par son importance économique, ce problème fait, depuis ces cinquante dernières années, l'objet de nombreuses études qui tentent de relier les propriétés rhéologiques du polymère fondu aux instabilités d'extrusion. Notre travail s'inscrit dans cette thématique, avec pour objectif de relier ces instabilités (peau de requin, « stick-slip ») aux propriétés rhéologiques et à la structure moléculaire du polymère, ainsi qu'aux conditions interfaciales. Dans cet article, nous présentons un développement des relations entre le « stick-slip » et le glissement à

la paroi de polymères linéaires. En partant du modèle de Brochard-de Gennes [2], nous avons précédemment proposé une expression de la contrainte critique d'apparition du défaut oscillant (stick-slip), qui tient compte des propriétés rhéologiques et de la distribution de masse molaire [3] :

$$\sigma_c = \frac{9C_{ad}}{4\pi} \frac{G_N^0 N_e}{\sqrt{N_0}} \quad (1)$$

où G_N^0 est le module de plateau, N_e le nombre de monomères entre deux points d'enchevêtrement successifs et N_0 le nombre de monomères par chaîne. Le paramètre C_{ad} prend en compte les contacts entre les molécules adsorbées et la surface de la filière. Dans le présent travail, nous allons exprimer ce coefficient en fonction de la mouillabilité du polymère sur la surface de la filière ou, plus précisément, en fonction de l'angle de contact apparent entre le polymère et la surface.

2. Angle de contact

Le paramètre de base pour caractériser le mouillage d'un liquide sur un solide est l'angle de contact, défini sur la Figure 1. Lorsqu'une goutte de liquide est déposée sur une surface solide plane, l'angle entre la tangente à la goutte au point de contact et la

surface solide est appelé angle de contact. A l'équilibre, la forme de la goutte est donnée par la tension interfaciale solide-vapeur γ_{sv} , la tension interfaciale solide-liquide γ_{sl} et la tension interfaciale liquide-vapeur γ_{lv} . Des considérations géométriques simples, indiquées sur la Figure 1, mènent à l'équation de Young écrite en 1805 [4] :

$$\gamma_{sv} - \gamma_{lv} \cos \theta - \gamma_{sl} = 0 \quad (2)$$

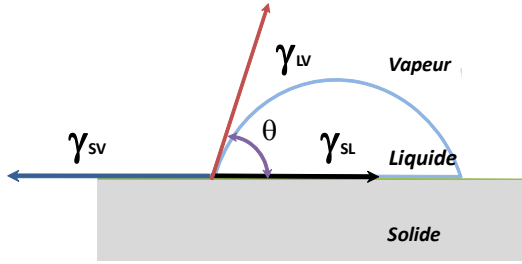


Fig. 1. Schéma d'une goutte de liquide sur une surface plane montrant l'angle de contact et les tensions interfaciales.

Le travail de l'équipe de Zisman [5-8] montre que l'angle de contact d'un liquide sur un solide est influencé par la composition chimique de la surface. Cela pourrait expliquer des résultats sur l'effet des matériaux constituant la filière sur la contrainte critique d'apparition des instabilités d'écoulement [9-11].

2. Travail d'adhésion

La notion de travail d'adhésion W_{adh} a été introduite par Dupré [12] en 1869. Elle est basée sur une approche thermodynamique de l'adhésion. L'équation de Dupré donne l'énergie par unité de surface qu'il faut fournir pour séparer un liquide L de la surface S qu'il mouille :

$$W_{adh} = \gamma_s + \gamma_{LV} - \gamma_{SL} \quad (3)$$

où γ_s est l'énergie surfacique du solide (dans le vide). La différence $\gamma_s - \gamma_{SL}$ est nulle ou essentiellement négative. En la négligeant et en introduisant l'équation de Young (Eq. (2)) dans celle de Dupré (Eq. (3)), nous obtenons :

$$W_{adh} = \gamma_{LV}(1 + \cos \theta) \quad (4)$$

Récemment, nous avons montré [13] que le coefficient C_{ad} peut s'exprimer de la façon suivante :

$$C_{ad} = \frac{W_{adh}}{2\gamma_{LV}} \quad (5)$$

Avec l'équation (4), C_{ad} devient :

$$C_{ad} = \frac{1 + \cos \theta}{2} \quad (6)$$

L'équation (6) montre que la fraction de monomères adsorbés à la surface de la filière est contrôlée par la mouillabilité du polymère fondu. Avec cette expression, la contrainte critique de cisaillement à l'apparition du stick-slip s'écrit maintenant :

$$\sigma_c = \frac{9(1 + \cos \theta)}{8\pi} \frac{G_N^0 N_e}{\sqrt{N_0}} \quad (7)$$

3. Confrontation avec l'expérience

Pour comparer le modèle (Eq. (7)) aux données expérimentales, nous avons sélectionné des travaux de la littérature où ont été mesurés simultanément les angles de contact et les contraintes de cisaillement critiques. Nous présentons sur la Figure 2 la comparaison des prévisions du modèle avec les données d'Anastasiadis et Hatzikiriakos [15] et Larrazabal et al. [10]. La Figure 2 montre une variation linéaire de la contrainte critique en fonction de l'angle de contact, comme prévue par l'Eq. (7). Enfin, on note un bon accord entre le modèle et les résultats expérimentaux.

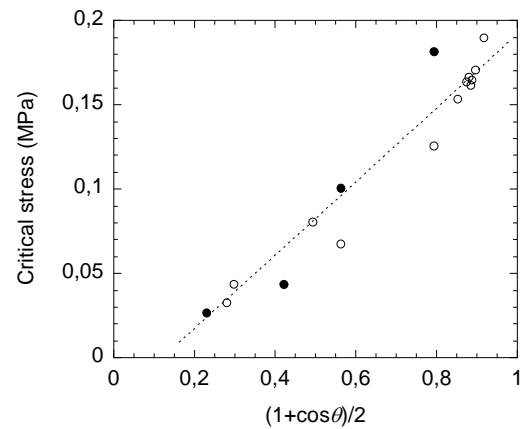


Fig. 2. Variation de la contrainte critique en fonction de l'angle de contact. Données de [10] (○) et [15] (●).

4. Effet de la rugosité

Dans l'équation de Young (Eq. (2)), les surfaces sont considérées parfaitement lisses, homogènes chimiquement et à l'état d'équilibre. Expérimentalement, il est impossible d'obtenir de telles conditions ; par conséquent, l'angle de contact, donné par l'équation de Young, est une quantité idéale. La condition qu'il est très difficile de respecter dans la mesure de l'angle de contact d'équilibre est l'homogénéité, en termes de rugosité et de composition chimique. Il y a eu beaucoup de

tentatives pour relier l'angle de contact apparent θ_A à l'angle de contact θ en tenant compte de la rugosité. Pour Wenzel [14], la rugosité augmente les tensions interfaciales solide-liquide et solide-vapeur par un facteur r , le coefficient d'aspérité. La relation entre θ_A et θ est :

$$r = \frac{\cos \theta_A}{\cos \theta} \quad (8)$$

Puisque r est toujours plus grand que 1, il s'en suit que, quand θ est inférieur à 90° , θ_A augmente avec l'accroissement de θ . A l'opposé, quand θ est plus grand que 90° , θ_A diminue avec l'augmentation de θ . Autrement dit, dans le cas d'un bon mouillage, θ_A diminue quand la rugosité de la surface augmente. A l'inverse, dans le cas d'un mauvais mouillage, θ_A augmente avec la rugosité de la surface. C'est habituellement ce qui est observé expérimentalement, bien que la situation puisse être plus complexe comme discuté plus tard. En prenant en compte cette condition, le coefficient C_{ad} est maintenant donné par :

$$C_{ad} = \frac{1 + r \cos \theta}{2} \quad (9)$$

et la contrainte critique de cisaillement à l'apparition du stick-slip devient :

$$\sigma_c = \frac{9(1 + r \cos \theta)}{8\pi} \frac{G_N^0 N_e}{\sqrt{N_0}} \quad (10)$$

Cette dernière expression fait intervenir à la fois la nature de la surface (paramètre θ) et sa rugosité (paramètre r). Il est malheureusement difficile d'obtenir des données expérimentales permettant sa validation.

5. Conclusion

En nous appuyant sur le modèle de Brochard –de Gennes et les notions de travail d'adhésion et d'angle de contact, nous proposons dans ce travail une nouvelle expression de la contrainte critique de cisaillement à l'apparition du stick-slip. Elle prend en considération la structure moléculaire du polymère, la distribution de poids moléculaire, les interactions polymère/surface et l'effet de la rugosité de la filière.

Références

1. S.G. Hatzikiriakos, K.B. Migler, *Polymer Processing Instabilities: Understanding and Control*, Marcel Dekker, New York (2004).
2. F. Brochard, P.G. de Gennes, Shear dependant slippage at a polymer interface, *Langmuir*, **8**, 3033-3037 (1992).
3. A. Allal, B. Vergnes, Molecular interpretation of the « stick-slip » defect of linear polymers, *J. Non-Newt. Fluid Mech.*, **164**, 1-8 (2009).
4. T. Young, An essay on the cohesion of fluids, *Phil. Trans. Roy. Soc. London*, **95**, 65-87 (1805).
5. E.G. Shafrin, W.A. Zisman, Constitutive relations in the wetting of low energy surfaces and the theory of the retraction method of preparing monolayers, *J. Phys. Chem.*, **64**, 5, 519-524 (1960).
6. H.W. Fox, W.A. Zisman, The spreading of liquids on low energy surfaces. I. polytetrafluoroethylene, *J. Colloid Sci.*, **5**, 514-531 (1950).
7. A.H. Ellison, H.W. Fox, W.A. Zisman, Wetting of fluorinated solids by hydrogen-bonding liquids, *J. Phys. Chem.*, **57**, 7, 622-627 (1953).
8. H.W. Fox, E.F. Hare, W.A. Zisman, Wetting properties of organic liquids on high-energy surfaces, *J. Phys. Chem.*, **59**, 1097-1106 (1955).
9. A.V. Ramamurthy, Wall slip in viscous fluids and influence of materials of construction, *J. Rheol.*, **30**, 337-357 (1986).
10. H.J. Larrazabal, A.N. Hrymak, J. Vlachopoulos, On the relationship between the work of adhesion and the critical shear stress for the onset of flow instabilities, *Rheol. Acta*, **45**, 705-715 (2006).
11. V.G. Ghanta, B.L. Riise, M.M. Denn, Disappearance of extrusion instabilities in brass capillary dies, *J. Rheol.*, **43**, 435-442 (1999).
12. Duprè A. *Théorie Mécanique de la Chaleur*, Gautier-Villars, Paris (1869).
13. A. Allal, B. Vergnes, 6th Annual European Rheology Conference, Göteborg (2010).
14. R.W. Wenzel, resistance of solid surfaces to wetting by water, *Ind. Eng. Chem.*, **28**, 988-994 (1936).
15. H. Anastasiadis, S.G. Hatzikiriakos, The work of adhesion of polymer/wall interfaces and its association with the onset of wall slip, *J. Rheol.*, **42**, 795-812 (1998).